IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant:

YAMASHITA, Yoichiro

Conf.:

Appl. No.:

NEW

Group:

Filed:

August 30, 2001

Examiner:

For:

BIODEGRADABLE CELLULOSE ACETATE STRUCTURE AND TOBACCO FILTER

LETTER

Assistant Commissioner for Patents Washington, DC 20231

August 30, 2001

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119 and 37 C.F.R. § 1.55(a), the applicant(s) hereby claim(s) the right of priority based on the following application(s):

Country

Application No.

Filed

JAPAN

11-065235

March 11, 1999

A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to Deposit Account No. 02-2448 for any additional fee required under 37 C.F.R. §§ 1.16 or 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

P.O. Box 747

Falls Church, VA 22040-0747

(703) 205-8000

GMM/rem 0042-0456P

Attachment

28,977

YAMASMAR, YONERING)

JAPAN PATENT OFFICE 日

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed いる事項と同一であることを証明する。

with this Office

出願年月日 Date of Application: 1999年 3月11日

出願番号 Application Number: 平成11年特許願第065235号

日本たばこ産業株式会社

人 Applicant(s):

2001年 5月31日

特許庁長官 Commissioner,
Japan Patent Office



特平11-065235

【書類名】

特許願

【整理番号】

A009807438

【提出日】

平成11年 3月11日

【あて先】

特許庁長官 殿

【国際特許分類】

C08B 3/06

A24D 3/10

【発明の名称】

生分解性セルロースアセテート構造物、およびたばこフ

ィルター

【請求項の数】

9

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区横川一丁目17番7号 日本たばこ産業株

式会社内

【氏名】

山下 陽一郎

【特許出願人】

【識別番号】

000004569

【氏名又は名称】 日本たばこ産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100058479

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴江 武彦

【電話番号】 03-3502-3181

【選任した代理人】

【識別番号】

100084618

【弁理士】

【氏名又は名称】 村松 貞男

【選任した代理人】

【識別番号】 100068814

【弁理士】

【氏名又は名称】 坪井 淳

【選任した代理人】

【識別番号】 100092196

【弁理士】

【氏名又は名称】 橋本 良郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100091351

【弁理士】

【氏名又は名称】 河野 哲

【選任した代理人】

【識別番号】 100088683

【弁理士】

【氏名又は名称】 中村 誠

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011567

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

図面 1

【物件名】

要約書 1

【包括委任状番号】 9100566

【プルーフの要否】 要 【書類名】 明細書

【発明の名称】 生分解性セルロースアセテート構造物、およびたばこフィルター

【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも表面領域が、リンの酸素酸の塩、リンの酸素酸の エステルもしくはその塩並びに炭酸およびその塩よりなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる生分解促進剤をセルロースアセテートに含有させ た生分解性セルロースアセテート組成物からなるセルロースアセテート構造物。

【請求項2】 該セルロースアセテートが、2.0ないし2.6のDS値を 有することを特徴とする請求項1記載のセルロースアセテート構造物。

【請求項3】 該生分解促進剤が、室温の水に対し、2g/dm³以下の溶解度を有することを特徴とする請求項1または2に記載のセルロースアセテート構造物。

【請求項4】 該生分解促進剤が、リン酸セルロース、リン酸スターチ、第 二リン酸カルシウム、第三リン酸カルシウムおよび水酸化リン酸カルシウムより なる群の中から選ばれる請求項3に記載のセルロースアセテート構造物。

【請求項5】 生分解促進剤が微粒子の形態にあり、生分解性セルロースアセテート組成物が、該組成物中に該微粒子を分散させるための分散剤をさらに含有することを特徴とする請求項1ないし4のいずれか1項に記載のセルロースアセテート構造物。

【請求項6】 生分解性セルロースアセテート組成物が、光分解促進剤をさらに含有する請求項1ないし5のいずれか1項に記載のセルロースアセテート構造物。

【請求項7】 繊維の形態にある請求項1ないし6のいずれか1項に記載の セルロースアセテート構造物。

【請求項8】 1ないし100mmの長さの短繊維により構成された不織布の形態にある請求項1ないし6のいずれか1項に記載のセルロースアセテート構造物。

【請求項9】 請求項7または8に記載のセルロースアセテート構造物を含

むたばこフィルター。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、生分解性に優れたセルロースアセテート構造物、およびたばこフィルターに関する。

[0002]

【従来の技術】

セルロースアセテートは、各種構造物として、例えば、たばこフィルター素材 および衣料用等の織布のための繊維として、フィルムとして、その他射出成形や 押出し成形等によって得られる構造物(成形品)として、広範に利用されている 。セルロースアセテート構造物の代表例は、繊維である。特に、たばこフィルタ ーは、その殆がセルロースアセテート繊維から構成されている。

[0003]

そのようなセルロースアセテート繊維は、現在、次のようにして製造されている。すなわち、まず、原料のセルロースアセテートのフレークをアセトン等の溶剤に溶解し、セルロースアセテートの紡糸原液を調製する。この紡糸原液を紡糸ノズル装置に供給し、高温雰囲気中に吐出する乾式紡糸法により紡糸し、セルロースアセテート繊維を得る。乾式紡糸法の代わりに、湿式紡糸法を用いることもできる。

[0004]

特にたばこフィルター用素材として使用されるセルロースアセテート繊維は、 たばこフィルターの作製を容易にするために、総繊度を適宜設定し、繊維トウと して仕上げる。たばこフィルターは、このセルロースアセテート繊維トウをたば こフィルタープラグ巻上装置により、開繊し、可塑剤を添着した後、フィルター 巻取紙でロッド形状に成形し、これを所定の長さに切断して作製されている。

[0005]

セルロースアセテートは、セルロースを酢酸エステル化したものであり、本質 的には生分解可能な物質である。しかし、実際には、このセルロースアセテート は、必ずしも、生分解性が良好であるとはいえない。

[0006]

例えば、セルロースアセテート繊維からなるたばこフィルターは、土壌中に埋設されたとしても、1~2年ではまだその原形を留めており、このたばこフィルターが完全に生分解されるまでには非常に長い時間を要する。

[0007]

たばこフィルターは、たばこ製品に組み込まれて消費者に流通され、喫煙に供され、最終的にたばこの吸殻として廃棄される。また、たばこフィルター製造工場から製造残渣として直接廃棄されるものもある。これらのたばこフィルターの廃棄物は、ゴミとして回収され、その処理のために時に埋立てに供される。また、たばこの吸殻は、場合によってはゴミとして回収されずに自然環境中に放置されることもある。このような事情は、たばこフィルターのみならず、セルロースアセテート構造物一般にも当てはまるといえる。

[0008]

このような状況の下、セルロースアセテートの生分解性に関する研究が盛んに行われている。それらの研究報告によると、セルロースアセテートの生分解速度は、セルロースアセテートのDS (Degree of Substitution:グルコース単位骨格当りのアセチル基の数)に依存する。すなわち、セルロースアセテートのDSが減少すると、セルロースアセテートの生分解速度は速くなる。また、その生分解機構は、以下のように考えられている。

[0009]

まず初めに、セルロースアセテートのアセチル基が微生物から放出される菌体外酵素によって切断され、その結果セルロースアセテートのDSが減少する。その後、このDSが減少したセルロースアセテートは、環境中に広く存在するセルラーゼ等によって容易に酵素分解を受け、最終的には微生物代謝を受けて二酸化炭素と水に資化される。ここで、生分解速度の律速段階は、初めのアセチル基の切断にあると考えられている。また、セルロースアセテートに限らずプラスチック材料全般にいえることであるが、これらプラスチックからなる構造物の生分解速度は、それら構造物の表面積にも依存するといわれている。すなわち、同一素

材であれば、微生物環境との単位重量当りの接触面積が大きい方が生分解速度は速くなる。いいかえれば、プラスチック構造物の表面積を大きくすることは、分解菌との接触機会を高めるものとなる。

[0010]

これらの知見を基に、セルロースアセテートの生分解速度の促進手法が幾つか提案されている。例えば、特開平6-199901号公報には、酢酸より酸解離定数の大きい酸化合物をセルロースアセテートに添加するという手法が記載されている。しかし、この手法を現状のセルロースアセテート繊維等の製造工程に適用しようとすると、酸化合物をセルロースアセテートに添加した時点から、その酸化合物の影響によりセルロースアセテートのアセチル基は化学的に加水分解反応を起こす。この酸化合物存在下でのセルロースアセテートのアセチル基の化学的加水分解反応は、セルロースアセテートのDSの低下に伴い酢酸を生成する。つまり、セルロースアセテートから脱離したアセチル基は酢酸として遊離する。従って、この手法では、遊離した酢酸の影響で、セルロースアセテート構造物は強い酢酸臭を呈することとなる。製品において、酢酸臭は好ましい要素ではなく、例えば、たばこフィルターでは、酢酸臭を呈することによってたばこの喫味は大きく悪化する。

[0011]

また、特表平7-500385号公報には、水溶性化合物、バクテリア分解可能な有機化合物をセルロースアセテートに添加するという手法が開示されている。この手法は、添加した水溶性化合物、バクテリア分解可能な有機化合物が自然環境中において水で溶出し、バクテリア分解を経て、セルロースアセテートから抜け出すことによってセルロースアセテート構造物が破壊し、当該構造物の表面積が増大するというものである。表面積が増大する結果、セルロースアセテートの生分解速度が高まる。しかし、この手法は、セルロースアセテートとセルロースアセテート分解菌の作用を本質的に強めるものではない。そのために、生分解速度の促進効果は不十分といえる。また、これらの化合物をセルロースアセテート繊維中に混入させることは現状のセルロースアセテート繊維の

製造工程上極めて困難である。

[0012]

さらに、セルロースアセテートの生分解能を有する微生物もしくはそれらの持つ各種分解酵素等をセルロースアセテートに添加するという手法もいくつか提案されている。例えば、特開平8-70852号公報には、セルロースアセテートの脱アセチル化能を有する微生物およびその微生物が生産する脱アセチル化酵素をセルロースアセテートに担持させるという手法が開示されている。これらの手法は、セルロースアセテートの生分解速度促進には有効であると考えられるが、しかしこれらの手法に用いられる添加剤はいずれも価格が高く、セルロースアセテート構造物のコストをかなり上昇させる。また、たばこフィルターの生産量を考慮すると、大量生産に適さないこれら添加剤の使用は極めて困難である。さらに、これらの手法に用いられる添加剤をセルロースアセテート繊維中に添加することは現状のセルロースアセテート繊維の製造工程上極めて困難であり、使用に際しては、現状のセルロースアセテート繊維からなるたばこフィルターの製造工程を大きく変更せざるをえず、汎用性を得ることは極めて困難である。

[0013]

また、難生分解性のセルロースアセテートと他の素材(主に、易生分解性素材)とを組み合わせることによって生分解性に優れるたばこフィルターを作製する手法もいくつか提案されている。例えば、特開平8-140654号公報には、木材パルプ等のセルロース繊維の表面にセルロースアセテート等のセルロースエステルを被覆するという手法が開示されている。しかし、これらの手法では、たばこフィルター全体としての生分解速度は易生分解性素材の生分解速度によって律せられるものであって、セルロースアセテート自体の生分解速度が本質的に高められるものではない。

[0014]

【発明が解決しようとする課題】

従って、本発明は、基本的に、セルロースアセテートとセルロースアセテート 分解菌との間の相互作用を本質的に増大させ、もってセルロースアセテートの自 然環境下での生分解性をより一層向上させるための手段を提供することを課題と する。

[0015]

より具体的には、本発明は、生分解性に優れ、品質劣化 (特に、酢酸臭の発生) が抑制されたセルロースアセテート構造物、およびそれを用いたたばこフィルターを提供することを目的とする。

[0016]

また、本発明は、現行の製造方法を大きく変更することなく製造することができる生分解性セルロースアセテート構造物を提供することを目的とする。

[0017]

【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記課題を解決すべく鋭意研究した結果、所定の化合物をセルロースアセテートに含有させることにより、特にセルロースアセテートを繊維の形態で製造する場合にその紡糸原液に所定の化合物を添加し、その紡糸原液を用いて繊維を紡糸することにより、セルロースアセテートの生分解性が大幅に向上することを見いだした。

[0018]

すなわち、本発明によれば、少なくとも表面領域が、リンの酸素酸の塩、リンの酸素酸のエステルもしくはその塩並びに炭酸およびその塩よりなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる生分解促進剤をセルロースアセテートに含有させた生分解性セルロースアセテート組成物からなるセルロースアセテート構造物が提供される。

[0019]

セルロースアセテートは、2.0ないし2.6のDS値を有することが好ましい。

[0020]

生分解促進剤は、好ましくは、室温の水に対し、2g/dm³以下の溶解度を有するものである。そのような生分解促進剤は、リン酸セルロース、リン酸スターチ、第二リン酸カルシウム、第三リン酸カルシウムおよび水酸化リン酸カルシウムよりなる群の中から選ぶことができる。

[0021]

生分解促進剤が微粒子の形態にある場合、生分解性セルロースアセテート組成物は、該組成物中に該微粒子を分散させるための分散剤をさらに含有することが好ましい。

[0022]

本発明において、生分解性セルロースアセテート組成物は、光分解促進剤をさらに含有することが好ましい。

[0023]

本発明のセルロースアセテート構造物は、繊維、または1ないし100mmの 長さの短繊維により構成された不織布の形態にあり得る。

[0024]

さらに、本発明によれば、繊維または不織布の形態にある本発明のセルロース アセテート構造物を含むたばこフィルターが提供される。

[0025]

【発明の実施の形態】

以下、本発明をその実施の形態を含めて詳しく説明する。

[0026]

本発明は、セルロースアセテートに所定の生分解促進剤を含有させた生分解性 セルロースアセテート組成物から作られたセルロースアセテート構造物およびた ばこフィルターに関する。

[0027]

本発明において使用されるセルロースアセテートは、セルロースアセテートであればよく、そのDS値に特に制限はない。例えば、DS2.0~2.6のセルロースジアセテート、DS2.6以上のセルローストリアセテート等を用いることができる。また、生分解性のよい領域であるDS2.0以下のセルロースアセテートを用いることもできる。特に、たばこフィルターを製造しようとする場合には、喫味の観点から、DS2.0~2.6のセルロースジアセテートが好ましく用いられる。

[0028]

本発明において、セルロースアセテートに含有される生分解促進剤は、リンの 酸素酸の塩、リンの酸素酸のエステルもしくはその塩並びに炭酸およびその塩よ りなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物である。

[0029]

酸素酸は、オキソ酸またはオキシ酸ともいわれるものであり、プロトンとして解離し得る水素が酸素原子に結合した酸であって、適切な場合にはそれらの縮合物も含まれる。より具体的には、リンの酸素酸には、オルトリン酸(本明細書において、オルトリン酸を単にリン酸ということがある)、ピロリン酸、メタリン酸、ポリリン酸が含まれる。これらのもの以外の酸素酸としては、亜リン酸、次亜リン酸等がある。また、リンの酸素酸のエステルは、その少なくとも1つのヒドロキシル基がエステル化された化合物であり、PO(OR)(OH)2、PO(OR)2(OH)およびPO(OR)3を含む。

[0030]

本発明において、塩には、水素塩も含まれ、また、水酸化リン酸塩等のような 複塩も含まれる。

[0031]

さらに、水和物が存在する生分解促進剤化合物については、その水和物も含まれ、その結合水の数はいずれであってもよい。

[0032]

いうまでもなく、生分解促進剤は、安全であり、また大量かつ受け入れ可能な 価格で供給されるものであることが望ましい。さらに、一般に、セルロースアセテートをたばこフィルター等を製造するために繊維状に成形する場合、紡糸ノズルからセルロースアセテート溶液(紡糸原液)を吐出させる紡糸法により製造されるが、これらの製造工程を考慮すると、本発明に用いられる生分解促進剤は、セルロースアセテートを溶解するための溶媒(例えば、アセトン、塩化メチレン/メタノール混合溶媒等)に可溶であるか、または溶媒に不溶な場合であっても、紡糸工程上、繊維の物性に影響のない程度までに微粉末化し得る化合物であるものが好ましい。

[0033]

このような安全性と製造の容易さの観点およびセルロースアセテートに対する生分解性の促進効果の点から、本発明において用いる生分解促進剤は、室温の水に対し、2g/dm³以下の溶解度を有することが好ましい。水に対する溶解度がこのように低いことにより、セルロースアセテート構造物からの水溶出が抑制される。そのような分解促進剤は、リン酸セルロース、リン酸スターチ、第二リン酸カルシウム、第三リン酸カルシウム、水酸化リン酸カルシウムまたはそれらの混合物であることが特に好ましい。

[0034]

本発明においては、生分解促進剤の添加量により、セルロースアセテートの生 分解速度を設計することができる。

[0035]

より具体的には、生分解促進剤の添加量は、目的とする生分解速度により任意に設定することができる。例えば、速く生分解させようとするときは、多量の分解促進剤を添加すればよい。しかし、セルロースアセテート構造物、特に繊維の製造安定性を考慮すると、生分解促進剤は、セルロースアセテートに対し、0.01~10重量%の割合で添加することが好ましく、0.01~3重量%の割合で添加することがさらに好ましい。

[0036]

ところで、本発明の生分解促進剤が紡糸原液を調製する際のセルロースアセテートの溶剤に不溶の場合には、当該生分解促進剤の分散状態が、その生分解速度促進効果に大きく寄与しており、同一添加量で比較すると、より分散した状態で生分解促進剤等がセルロースアセテート繊維中に存在する場合の方がその促進効果はより顕著であることがわかった。したがって、好適な分散剤を併用することがより好ましい。そのような分散剤としては、カルボン酸系高分子等を例示することができる。

[0037]

また、セルロースアセテートの溶媒に不溶の生分解促進剤の粒子径は、その生 分解速度促進効果に大きく寄与しており、同一添加量で比較すると、より小さい 粒子径のものの方がその促進効果はより顕著であることもわかった。従って、生 分解促進剤はより小さい粒子径であることが好ましい。セルロースアセテートの 溶剤に不溶の生分解促進剤は、1.0μm以下の平均粒径を有することが好まし いことがわかった。

[0038]

さらに、本発明者は、本発明の生分解促進剤と併せて、髙光活性触媒用酸化チ タン等の光分解促進剤を含有させることにより、本発明の生分解促進剤による生 分解速度促進と相まって、セルロースアセテート構造物の分解性をさらに高める ことができることを見いだした。この場合、本発明の生分解促進剤により達成で きるセルロースアセテート構造物の顕著な破壊が高光活性触媒用酸化チタン等の 光分解促進剤の促進効果発現をより容易にする。それと同時に、高光活性触媒用 酸化チタン等の光分解促進剤により生じたセルロースアセテート構造物の破壊が 本発明の生分解促進剤による生分解速度促進効果をより一層発現させる。このよ うに、分解過程にあるセルロースアセテート構造物の消失を相乗的に速めること ができる。また、このような本発明の生分解促進剤と高光活性触媒用酸化チタン 等の光分解促進剤を併せて含有するセルロースアセテート繊維からなるたばこフ イルターは、自然環境中に投棄された初期の段階(フィルター形状が保たれた状 態)では、光の作用を受け易いその上面部を主に光分解作用により崩壊させ、一 方、微生物の作用を受け易いその下面部を主に生分解作用により崩壊させること によって、たばこフィルターとしての形状をより一層速く崩壊させることができ るという、それぞれの促進剤単独では十分に期待できない効力を併せ有する。他 のセルロースアセテート構造物においても同様である。

[0039]

光分解促進剤としての酸化チタンは、好ましくは粒径 0. 1 μ m以下のアナターゼ型酸化チタンであり、セルロースアセテートに対して、0. 01~10重量%の割合で添加することが好ましく、0. 01~3重量%の割合で添加することがより好ましい。

[0040]

本発明のセルロースアセテート組成物は、本発明の生分解促進剤その他の添加剤を含有させること以外は通常の方法により種々の構造物に成形することができ

るので、通常のセルロースアセテート構造物の製造方法を特に変更する必要はない。例えば、本発明のセルロースアセテート構造物は、セルロースアセテートのアセトン、塩化メチレン等の溶液に本発明の生分解促進剤等を添加した後通常の手法により成形することができるし、可塑剤等を配合した熱成形可能なセルロースアセテートに生分解促進剤等を溶融混合した後、通常の手法により成形することができる。

[0041]

また、たばこフィルターに用いられるセルロースアセテート繊維は、例えば、 以下のようにして製造することができる。

[0042]

まず、セルロースアセテートと本発明の添加剤を含有する溶液(紡糸原液)を 調製する。溶媒としては、塩化メチレン、アセトン等の単独溶媒、あるいは塩化 メチレンとメタノール等の混合溶媒を使用することができる。セルロースアセテ ートの濃度は、一般に、15~35重量%であり、好ましくは18~30重量% である。この紡糸原液には、生分解促進剤等の添加剤は、上記範囲の割合で含有 される。この紡糸原液は、セルロースアセテート用の溶媒に生分解促進剤等の添 加剤を溶解もしくは分散させた溶液と、セルロースアセテート用の溶媒にセルロ ースアセテートを溶解させた溶液とを混合することによって、またはセルロース アセテートの溶液に直接、生分解促進剤等の添加剤を添加することによって調製 することができる。

[0043]

このようにして得た本発明の生分解促進剤等の添加剤を含有するセルロースアセテート紡糸原液を紡糸ノズル装置に供給し、高温雰囲気中に吐出する乾式紡糸法により紡糸し、セルロースアセテート繊維を得ることができる。また、乾式紡糸ではなく、湿式紡糸を行ってもよい。さらに紡糸に際しては、上記のように、均一分散された紡糸原液をそのまま繊維状に紡糸してもよいが、本発明の添加剤を含有するセルロースアセテート紡糸原液と、これらの添加剤が添加されていないセルロースアセテート紡糸原液とを用いて、少なくとも本発明の添加剤を含有するセルロースアセテートが繊維表面に現れるように、繊維サイドバイサイド型

、または鞘芯型等に複合紡糸する方法を用いることもできる。さらに、紡糸原液の調製に際しては、その特性を損なわない範囲でその他の添加剤を併用することもできる。例えば、紡糸原液の均一性を高めるために、あるいは粘度調節のために、乳化剤、可溶化剤、粘度調節剤等を併用してもよい。ここで述べたことからもわかるように、本発明のたばこフィルタープラグを構成する各セルロースアセテート繊維は、少なくともその表面領域に本発明の添加剤を含有する。

[0044]

このようにして得られた本発明のセルロースアセテート繊維は、慣用の方法によりたばこフィルターとして製造することができる。その製造方法ならびにフィルター構造には特に制限はなく、例えば、以下のようにして製造することができる。

[0045]

すなわち、上記セルロースアセテート繊維をトウの形態とし、これを、たばこフィルタープラグ巻上装置にて、開繊し、可塑剤(例えば、トリアセチルグリセリン)を添着した後、繊維ロッド形状に成形し、必要な長さに切断してフィルタープラグを形成する。なお、フィルタープラグの作製を容易にするために、繊維束としての総繊度を適宜設定する。

[0046]

本発明においては、本発明のセルロースアセテート繊維を1~100mmにカットしてなる短繊維から作製した不織布シートを用い、通常のプラグ巻上装置でロッド状に成形することが好ましい。セルロースアセテート繊維トウを可塑剤で固めたたばこフィルターでは、セルロースアセテート繊維同士は溶融接着により強固に結合しており、その結果、自然環境中に投棄されたたばこフィルターは長期間安定的にロッド形状を保持する傾向にある。これに対し、不織布シートからなるたばこフィルターでは、自然環境中に投棄された際に、多量の水(雨、海水、川水、湖水等)によって容易にロッド形状を崩壊し、シート状に地表に広がりを持って展開される。すなわち、生分解速度に影響する素材の微生物環境との接触面積が大きくなり、結果として、たばこフィルターの分解速度はより一層促進される。従って、本発明のセルロースアセテートの生分解速度促進と相まって、

たばこフィルターの分解性をさらに高めることができる。なお、この際に用いる不織布シートは水分散性に優れるものであることがより好ましい。そのような水分散性に優れた不織布シートは、例えば特開平9-9949号公報に記載された方法により得ることができる。

[0047]

繊維トウまたは不織布のいずれを用いる場合でも、通常、たばこフィルターはフィルター巻取紙でセルロースアセテート繊維トウあるいはセルロースアセテート繊維不織布をロッド形状にラップした形に仕上げられる。

[0048]

本発明のセルロースアセテート繊維は、単独で使用してフィルターを製造してもよく、あるいは本発明のセルロースアセテート繊維を一構成材料として、これに他の構成材料を併用することによってもフィルターを製造し得る。そのような他の構成材料としては、天然もしくは半合成材料(例えば、パルプ、リンター、木綿、麻、ビスコースレーヨン、銅アンモニアレーヨン、リヨセル、羊毛等、あるいはポリヒドロキシアルカノエート等の微生物生産系の生分解性高分子)、通常の合成材料(例えば、ポリプロピレン等のポリオレフィン、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリアミド)、生分解性合成材料(例えば、ポリ乳酸、ポリカプロラクトン、ポリブチレンサクシネート、ポリビニルアルコール)、光分解性材料等を繊維や不織布の形態で用いることができる。その場合、特に生分解性に優れた材料を使用することが好ましい。また、繊維ではないが、でんぷんの発泡体も生分解性に優れた材料として使用できる。

[0049]

また、セルロースアセテート繊維の形状は、ステープル、フィラメントのいずれであってもよいが、本発明のたばこフィルターを構成するセルロースアセテート繊維としては、繊維トウ形状とすることが好ましく、トウの総繊度は任意とすることができる。例えば、0.5から15デニールの繊維を3000~50000本集束させ、25mm長さ当り10~50の捲縮を付与したバンド状の繊維トウが好ましい。さらに、各繊維の断面形状は、丸形、四角形等特に限定されないが、たばこフィルターとしての濾過性能の観点から、多葉状の断面形状が好ま

しく、その中でも製造工程安定性の点から、Y字状の断面形状が好ましく用いられる。また、セルロースアセテート繊維は、フィブリルの形態にあってもよい。フィブリルの形態にある場合には、上に述べた他の構成材料、または通常の繊維の形態にある本発明のセルロースアセテート繊維と併用することが好ましい。

[0050]

さらに、上記たばこフィルターの製造方法において、可塑剤の代わりに水溶性接着剤を用いることが好ましい。可塑剤を使用した場合では、セルロースアセテート繊維同士は溶融接着により強固に結合しており、その結果、自然環境中に投棄されたたばこフィルターは長期間安定的にロッド形状を保持する傾向にある。これに対し、水溶性接着剤を使用した場合には、セルロースアセテート繊維同士の接着点は、自然環境中に投棄された際に、多量の水(雨、海水、川水、湖水等)によって容易に解離される。その結果、たばこフィルターは、ロッド形状を容易に崩壊することができる。ロッド形状が崩壊したセルロースアセテート繊維は、自然環境中では、例えば地表に広がりをもって展開され、生分解速度に影響する素材の微生物環境との接触面積が大きくなり、結果として、たばこフィルターの分解性はより一層促進される。そのため、本発明のセルロースアセテートの生分解性促進と相まって、たばこフィルターの分解性をさらに高めることができる。そのような水溶性接着剤としては、特開平8-187073号公報や特開平9-266783号公報に記載された水溶性接着剤を好ましく例示することができる。

[0051]

また、前述した慣用のたばこフィルター製造方法の中で、フィルター巻取紙に水分散性に優れるものを用いることが好ましい。たばこフィルターが自然環境中に投棄された場合、その外周面に配しているフィルター巻取紙の存在は、セルロースアセテート繊維と微生物環境との接触効率を大きく阻害する要因となっている。通常、フィルター巻取紙はパルプ等のセルロースから成り、このセルロースは極めて生分解性に優れた素材である。従って、自然環境中では、たばこフィルターの外周面に配しているフィルター巻取紙は、比較的速やかに消失していく(およそ1~6ヶ月)。しかし、置かれた環境によっては1年以上もその原形を留

めていることがある。そこで、セルロースアセテート繊維と微生物環境との接触 効率を最大限に引き出すために、フィルター巻取紙として水分散性に優れる巻取 紙を用いることがより好ましい。この場合、自然環境中に投棄されたたばこフィ ルターは、多量の水(雨、海水、川水、湖水等)によって容易にその外周面に配 しているフィルター巻取紙を分散、脱離させることができ、その結果、セルロー スアセテート繊維は、例えば、地表面に直接展開され、生分解速度に影響する素 材の微生物環境との接触面積が大きくなり、結果として、たばこフィルターの分 解速度はより一層促進される。従って、本発明のセルロースアセテートの生分解 速度促進と相まって、たばこフィルターの分解性をさらに高めることができる。 そのような水分散性に優れたフィルター巻取紙としては特開平9-47271号 公報や特開平9-47272号公報に記載されたフィルター巻取紙を例示するこ とができる。

[0052]

本発明による添加剤を含有するセルロースアセテート構造物およびたばこフィルター用素材としてのセルロースアセテート繊維は、以下の特徴を持つ。

[0053]

まず、本発明による添加剤のセルロースアセテート構造物への添加は、慣用のセルロースアセテート構造物製造工程をなんら変更することなく簡便に実施することができる。例えば、射出成形や押出し成形等によって得られる構造物の場合、可塑剤等を混入した熱成形可能なセルロースアセテートに添加剤を溶融混合することによって本発明のセルロースアセテート構造物を作製することができる。また、たばこフィルター用素材としてのセルロースアセテート繊維に関しても同様のことがいえ、本発明によるセルロースアセテート繊維への添加剤は、セルロースアセテートを溶解する溶剤(例えば、アセトン、塩化メチレン/メタノール混合溶剤等)に可溶であるか、もしくは、溶剤に不溶な場合には、紡糸工程上、繊維物性上影響のおよばない程度まで微粉末化されているため、セルロースアセテート繊維の製造を困難にするものではない。言い換えるならば、本発明によるセルロースアセテート繊維の製造方法は、添加剤を紡糸原液中に投入するという工程を付加するだけで、その外はなんら現行工程を変更することなく適用するこ

とができる。

[0054]

また、本発明によるセルロースアセテート構造物およびセルロースアセテート 繊維への添加剤は、セルロースアセテート構造物およびセルロースアセテート繊 維の製造工程中ならびに製品の段階では、その酸性度もしくは塩基性度が問題な く低い値であるため、セルロースアセテートとなんら化学的に反応することなく セルロースアセテート構造物中およびセルロースアセテート繊維中に安定的に存 在することができる。従って、このセルロースアセテート構造物およびセルロー スアセテート繊維は、添加剤の使用に起因する品質の劣化(特に、酢酸臭の発生)がなく、添加剤のない通常のセルロースアセテート構造物およびセルロースア セテート繊維と同等の品質を呈する。

[0055]

そして、本発明によるセルロースアセテート構造物およびセルロースアセテート繊維およびこのセルロースアセテート繊維からなるたばこフィルターが自然環境中に投棄されると、それらは、含有する添加剤の生分解速度促進効果によって、顕著な生分解性を発現する。その際、本発明による添加剤は、その水への溶解度を所定のものより選択するため、自然環境中で、添加剤がセルロースアセテート構造物中およびセルロースアセテート繊維中から容易に離脱(水溶出)することなく、長期的にセルロースアセテート構造物中およびセルロースアセテート繊維中に留まることができる。つまり、自然環境中で、いかなる時と場所においても常に添加剤の生分解速度促進効果を発現することができる。

[0056]

【実施例】

以下、本発明を実施例により説明する。

[0057]

実施例1

セルロースアセテートフレーク (DS=2.5)を濃度28重量%になるよう アセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に第三リン酸 カルシウムをセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、撹拌して 均一にした。得られたセルロースアセテート溶液をガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100μmのセルロースアセテートフィルムを得た。

[0058]

実施例2

セルロースアセテートフレーク (DS=2.5)を濃度28重量%になるよう アセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に第二リン酸 カルシウムをセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、撹拌して 均一にした。得られたセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥 して、厚さ約100μmのセルロースアセテートフィルムを得た。

[0059]

実施例3

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液にリン酸セルロースをセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。得られたセルロースアセテート溶液をガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 μ mのセルロースアセテートフィルムを得た。

[0060]

比較例1

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるよう アセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液をガラス板上 に流延し、乾燥して、厚さ約 100μ mのセルロースアセテートフィルムを得た

[0061]

比較例2

セルロースアセテートフレーク (DS=2.5)を濃度28重量%になるよう アセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、ポリリン 酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、撹拌して均一にし た。得られたセルロースアセテート溶液をガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ 約100μmのセルロースアセテートフィルムを得た。

[0062]

<酢酸濃度の測定および酢酸臭気レベルの評価>

実施例1~実施例3および比較例1~2で得られたセルロースアセテートフィルムを用いて、それらフィルムの酢酸臭気レベルを評価した。酢酸濃度は、製造直後の各フィルムから直ちに円形片(直径5 c m)を打ち抜き、これを臭気袋に詰め、50℃の恒温室に放置し、1週間後の臭気袋内の酢酸濃度をガス検知管法により測定した。また同時に、官能試験法によりフィルムの酢酸臭気レベルを評価した。結果を表1に示す。

[0063]

【表1】

表 1:各種セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気評価結果

試料	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル*
実施例1	0.8	0
実施例2	1. 0	0
実施例3	1. 0	0
比較例1	0.8	0
比較例2	44.0	2

*酢酸臭気レベル

0: 臭気を感じない

1: 臭気を感じる

2:強く臭気を感じる

[0064]

以上の結果より、本発明による生分解促進剤を含有するセルロースアセテート組成物は、生分解促進剤の使用に起因する酢酸臭の発生(品質の劣化)がないことがわかる。すなわち、本発明による生分解促進剤は、セルロースアセテート組成物の製造工程中や製品の段階では、セルロースアセテートとなんら化学的に反応することなくセルロースアセテート組成物中に安定的に存在し、したがって、添加剤のない通常のセルロースアセテート組成物と同等の品質を呈する。

[0065]

<水溶出試験>

実施例1~実施例3で得られたセルロースアセテートフィルムからの添加剤の水溶出挙動を評価した。評価試験方法は、作製したフィルムの円形片(直径5 cm)をイオン交換水中に10日間浸漬した後、セルロースアセテートフィルムからの水中に溶出した添加剤を測定することによって行った。添加剤の水溶出量は、水中浸漬前後のフィルム重量(乾燥重量)から算出し、初期添加量との比をもって水溶出率とした。結果を表2に示す。

[0066]

【表2】

表 2: セルロースアセテートフィルムからの添加剤の水溶出量評価結果

試料	添加剤の水溶出率(%)
実施例1	2. 0
実施例2	16.1
実施例3	4. 3

[0067]

以上の結果より、本発明のセルロースアセテート組成物中の各種添加剤は水溶出しないことがわかる。この結果は、自然環境中で、添加剤がセルロースアセテート組成物中から容易に離脱(水溶出)することなく、長期的にセルロースアセテート組成物中に留まることができることを意味する。すなわち、本発明の生分解促進剤は、自然環境中で、いかなる時と場所においても常に添加剤の生分解速度促進効果を発現することができる。

[0068]

<生分解性の評価>

実施例1~実施例3および比較例1で得られたセルロースアセテートフィルムの生分解性を評価した。評価試験方法は、作製したフィルムの円形片(直径5 cm)を湿った土壌中に埋設し、45日後のフィルムの重量減少率を測定すること

によって行った。重量減少率は、土壌埋設前後のフィルム重量(乾燥重量)から 算出した。結果を表3に示す。

[0069]

【表3】

表 3: セルロースアセテートフィルムの生分解性評価結果

試 料	重量減少率(%)	フィルムの外観観察
実施例1	6.8	虫蝕痕目立つ。
実施例2	9. 1	虫蝕痕目立つ。
実施例3	16.2	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
比較例1	0.8	顕著な変化なし

[0070]

以上の結果より、いずれの実施例においても、セルロースアセテート構造物の 生分解速度の促進が達成されていることがわかる。

[0071]

実施例4

セルロースアセテート (DS: 2.5) を濃度28重量%となるようにアセトンに溶解させ、これにセルロースアセテートに対して0.5重量%の割合で酸化チタン (重量平均粒径0.2 μ m) を添加し、攪拌して均一に分散させた。得られた分散溶液に第二リン酸カルシウム (重量平均粒径0.46 μ m) をセルロースアセテートに対して1重量%の割合で添加し、均一に分散するまで撹拌して紡糸原液を得た。

[0072]

この紡糸原液を濾過し、慣用のフィルタートウ紡糸装置を用いた乾式紡糸によって紡糸した。作製したセルロースアセテートフィラメントを所定量束ねて捲縮をかけ、セルロースアセテート繊維トウを得た。ここでは、繊維断面形状がY型、単糸繊度が3デニール、総繊度が36000デニールのセルロースアセテート繊維トウに仕上げた。

[0073]

得られたセルロースアセテート繊維トウを用いて、以下のようにたばこフィルターを作製した。すなわち、慣用のたばこフィルタープラグ巻上装置にて、セルロースアセテート繊維トウを開繊して、可塑剤(トリアセチルグリセリン)をセルロースアセテート繊維トウに対して6.0重量%の割合で添着した後、フィルター巻取紙で包みこむようにしてロッド状に成形し、所定の長さに切断してフィルタープラグを作製した。

[0074]

なお、得られたセルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターを観察した結果、第二リン酸カルシウムの添加は、セルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。また、得られたセルロースアセテート繊維を灰化し、その灰分の定量(秤量)および定性分析(元素分析)により、セルロースアセテート繊維中への第二リン酸カルシウムの含有量を算出した。結果を表4に示す。

[0075]

【表4】

表4: セルロースアセテート繊維中の添加剤含有量

紡糸原液への仕込量	繊維中の含有量
1. 0重量%	0.86重量%
(対セルロースアセテート)	(対セルロ―スアセテ―ト)

[0076]

以上の結果から、本実施例で用いた第二リン酸カルシウムのような固形の添加剤をセルロースアセテート繊維中へ含有させることが可能であることがわかる。

[0077]

実施例 5

セルロースアセテート (DS=2.5) を濃度28重量%となるようにアセトンに溶解し、これにセルロースアセテートに対して0.5重量%の割合で酸化チタン (重量平均粒径0.2 μ m) を添加し、攪拌して均一に分散させた。得られた分散溶液に第二リン酸カルシウム (重量平均粒径1.20 μ m) をセルロース

アセテートに対して1重量%の割合で添加し、均一に分散するまで撹拌して紡糸 原液を得た。この紡糸原液を用いて実施例4と同様にしてセルロースアセテート 繊維トウおよびたばこフィルターを作製した。

[0078]

なお、得られたセルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターを観察 した結果、第二リン酸カルシウムの添加は、セルロースアセテート繊維トウおよ びたばこフィルターの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

[0079]

比較例3

セルロースアセテート(DS=2.5)を濃度28重量%となるようにアセトンに溶解し、これにセルロースアセテートに対して0.5重量%の割合で酸化チタン(重量平均粒径0.2μm)を添加し、攪拌して均一に分散させ、紡糸原液を得た。この紡糸原液を用いて実施例4と同様にしてセルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターを作製した。

[0080]

比較例4

セルロースアセテート(DS=2.5)を濃度28重量%となるようにアセトンに溶解し、これにセルロースアセテートに対して0.5重量%の酸化チタン(重量平均粒径0.2μm)を添加し、攪拌して均一に分散させた。この分散溶液にポリリン酸をセルロースアセテートに対して1重量%の割合で添加し、均一に溶解するまで撹拌して紡糸原液を得た。この紡糸原液を用いて実施例4と同様にしてセルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターを作製した。

[0081]

<酢酸濃度および酢酸臭気レベルの評価>

実施例4~実施例5および比較例3~比較例4で得られたたばこフィルターの 酢酸濃度および酢酸臭気レベルを評価した。酢酸濃度の測定は、たばこフィルタ ー(フィルター長25mm)を、作製後直ちに臭気袋に詰め、50℃の恒温室に 放置し、2週間後の臭気袋内の酢酸濃度をガス検知管法により測定することによ って行った。また同時に、官能試験法によりたばこフィルターの酢酸臭気レベル を評価した。結果を表5に示す。

[0082]

【表5】

表 5:たばこフィルターの酢酸臭気評価結果

言式半斗	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル*	
実施例4	0.5	0	
実施例5	0.3	0	
比較例3	0.5	0	
比較例4	11.0	1~2	

*酢酸臭気レベル

O: 臭気を感じない

1: 臭気を感じる

2:強く臭気を感じる

[0083]

以上の結果より、本発明によるセルロースアセテート繊維は、添加剤の使用に起因する酢酸臭の発生(品質の劣化)がないことがわかる。つまり、本発明による添加剤は、セルロースアセテート繊維の製造工程中ならびに製品の段階では、セルロースアセテートとなんら化学的に反応することなくセルロースアセテート繊維中に安定的に存在し、したがって添加剤のない通常のセルロースアセテート繊維と同等の品質を呈する。

[0084]

<水溶出試験>

前記の実施例4で得られたたばこフィルターを用いて、セルロースアセテート 繊維からの添加剤の水溶出挙動を評価した。評価試験方法は、作製したたばこフィルター(フィルター長25mm;巻取紙なし)を水中(イオン交換水を使用) に浸漬し、たばこフィルターを形成するセルロースアセテート繊維中の第二リン 酸カルシウムの含有量を経時的に測定した。なお、第二リン酸カルシウムの含有量は実施例4と同様の方法で算出した。結果を図1に示す。

[0085]

図1に示す結果より、セルロースアセテート繊維中の第二リン酸カルシウムは 水溶出しないことがわかる。この結果は、自然環境中で、添加剤がセルロースア セテート繊維中から容易に離脱(水溶出)することなく、長期的にセルロースア セテート繊維中に留まることができることを意味する。つまり、自然環境中で、 いかなる時と場所においても常に添加剤の生分解速度促進効果を発現することが できる。

[0086]

<生分解性の評価>

実施例4~実施例5および比較例3で得られたたばこフィルターを用いて、それらたばこフィルターの生分解性を評価した。評価試験方法は、作製したたばこフィルター(フィルター長25mm;巻取紙なし)を湿った土壌中に埋設し、47日後のたばこフィルターの重量減少率を測定した。重量減少率は、土壌埋設前後のたばこフィルターの重量(乾燥重量)から算出した。結果を表6に示す。

[0087]

【表 6】

表 6:たばこフィルターの生分解性評価結果

試料	重量減少率(%)	フィルターの外観観察
実施例4	42.1	やせ細り、繊維がばらばらと脱離
実施例5	27. Ó	やせ細り、繊維がばらばらと脱離
比較例3	2. 3	顕著な変化なし

[0088]

以上の結果より、いずれの実施例においても、たばこフィルターの生分解速度の促進が達成されていることがわかる。さらには、たばこフィルターの生分解速度は、添加剤の粒子径に依存していることがわかる。つまり、速く生分解させようとする時は、添加剤の粒子径をより小さくすればよいことがわかる。

[0089]

実施例6

セルロースアセテート(DS=2.5)を濃度28重量%となるようにアセトンに溶解し、これにセルロースアセテートに対して1重量%の割合で高光活性触媒用酸化チタン(重量平均粒径0.02μm)を添加し、攪拌して均一に分散させた。この分散溶液に第二リン酸カルシウム(重量平均粒径1.20μm)をセルロースアセテートに対して1重量%の割合で添加し、均一に分散するまで撹拌して紡糸原液を得た。この紡糸原液を用いて実施例4と同様にしてセルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターを作製した。

[0090]

得られたセルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターを観察した結果、第二リン酸カルシウムおよび高光活性触媒用酸化チタンの添加は、セルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

[0091]

比較例5

セルロースアセテート (DS=2.5) を濃度28重量%となるようにアセトンに溶解し、これにセルロースアセテートに対して1重量%の割合で高光活性触媒用酸化チタン (重量平均粒径0.02 μ m) を添加し、攪拌して均一に分散させて、紡糸原液を調製した。この紡糸原液を用いて実施例4と同様にしてセルロースアセテート繊維トウおよびたばこフィルターを作製した。

[0092]

<総合的な分解性の評価>

実施例 5、実施例 6、比較例 3 および比較例 5 で得られたたばこフィルターの自然環境中での総合的な分解性を評価した(生分解、光分解、形状崩壊等の複数の要因からなる)。評価は、作製したたばこフィルター(フィルター長 2 5 mm;巻取紙なし)を屋外土壌上に設置し、6ヶ月後のそれらたばこフィルターの外観変化ならびに体積減少率を測定することによって行った。体積減少率は、屋外土壌上設置前後のたばこフィルターの体積から算出した。外観観察の結果および体積減少率を表 7 に示す。

[0093]

【表7】

表7: たばこフィルターの分解性評価結果

試 料	体積減少率(%)	試料の外観観察
実施例5	22.8	主に接地面から分解が進行。
実施例6	39.9	顕著にやせ細り、全体的に分解が進行。
比較例3	11.1	顕著な変化なし。
比較例5	20.8	主にフィルター上面部の繊維がばらばらと脱離

[0094]

表7に示す結果より、いずれの実施例においても、たばこフィルターの分解速度の促進が達成されていることがわかる。さらには、たばこフィルターの分解速度は、本発明による添加剤を高光活性触媒用酸化チタンと併用することによって、飛躍的に促進されることがわかる。

[0095]

【発明の効果】

以上述べたように、本発明によれば、生分解性に優れ、品質劣化(特に、酢酸 臭の発生)が抑制されたセルロースアセテート構造物およびそれを用いたたばこ フィルターが提供される。

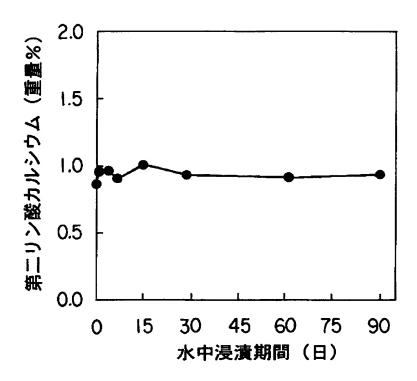
【図面の簡単な説明】

【図1】

セルロースアセテートに含有された第二リン酸カルシウムの水溶出結果を示す グラフ図。 【書類名】

図面

【図1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】セルロースアセテートの生分解性を一層向上させるための手段を提供す る。

【解決手段】リンの酸素酸の塩、リンの酸素酸のエステルもしくはその塩並びに 炭酸およびその塩よりなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる 生分解促進剤をセルロースアセテートに含有させる。

【選択図】 なし

出願人履歴情報

識別番号

[000004569]

1. 変更年月日 1995年 5月16日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都港区虎ノ門二丁目2番1号

氏 名 日本たばこ産業株式会社